

09/889776

JC18 Re 5CT/PTO 23 JUL 2001

DOCKET NO.: 211753US0PCT

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: YOSHITAKE Masaru et al.

SERIAL NO.: NEW U.S. PCT APPLICATION

FILED: HEREWITH

INTERNATIONAL APPLICATION NO.: PCT/JP00/00256

INTERNATIONAL FILING DATE: January 20, 2000

FOR: POLYMER ELECTROLYTE FUEL CELL

REQUEST FOR PRIORITY UNDER 35 U.S.C. 119
AND THE INTERNATIONAL CONVENTION

Assistant Commissioner for Patents
Washington, D.C. 20231

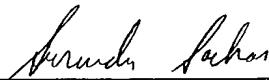
Sir:

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicant claims as priority:

| <u>COUNTRY</u> | <u>APPLICATION NO</u> | <u>DAY/MONTH/YEAR</u> |
|-----------------------|------------------------------|------------------------------|
| Japan | 11-013437 | 21 January 1999 |

Certified copies of the corresponding Convention application(s) were submitted to the International Bureau in PCT Application No. PCT/JP00/00256. Receipt of the certified copy(s) by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

Respectfully submitted,
OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.



Norman F. Oblon
Attorney of Record
Registration No. 24,618
Surinder Sachar
Registration No. 34,423



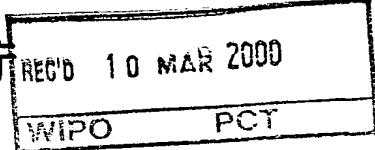
22850

(703) 413-3000
Fax No. (703) 413-2220
(OSMMN 1/97)

THIS PAGE BLANK (USPTO)

24.02.00

日本特許庁

PATENT OFFICE
JAPANESE GOVERNMENT

JP00/276

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

09/889776

出願年月日

Date of Application:

1999年 1月21日

出願番号

Application Number:

平成11年特許願第013437号

出願人

Applicant(s):

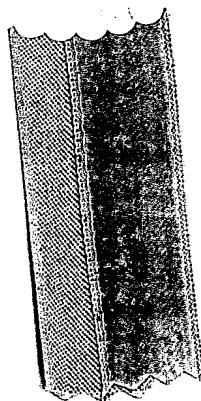
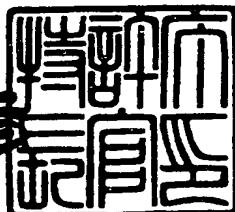
旭硝子株式会社

PRIORITY
DOCUMENTSUBMITTED OR TRANSMITTED IN
COMPLIANCE WITH RULE 17.1(a) OR (b)

2000年 2月 4日

特許庁長官
Commissioner,
Patent Office

近藤 隆彦



出証番号 出証特2000-3004822

【書類名】 特許願

【整理番号】 980838

【提出日】 平成11年 1月21日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 H01M 8/04

H01M 8/10

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株
式会社内

【氏名】 吉武 優

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株
式会社内

【氏名】 柳沢 栄治

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株
式会社内

【氏名】 遠藤 栄治

【発明者】

【住所又は居所】 神奈川県横浜市神奈川区羽沢町1150番地 旭硝子株
式会社内

【氏名】 国狭 康弘

【特許出願人】

【識別番号】 000000044

【氏名又は名称】 旭硝子株式会社

【代理人】

【識別番号】 100090918

【弁理士】

【氏名又は名称】 泉名 謙治

【電話番号】 03-3218-5647

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 009830

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【ブルーフの要否】 要

【書類名】明細書

【発明の名称】固体高分子電解質型燃料電池

【特許請求の範囲】

【請求項1】

膜状の固体高分子電解質と該電解質を介して対向する一対の燃料極及び空気極とを有する膜-電極接合体を、セパレータを介して複数積層してなる固体高分子電解質型燃料電池において、

前記セパレータは、前記燃料極に燃料ガスを供給する燃料ガス流路と、前記空気極に酸化剤を供給する酸化剤流路と、反応にともなって発生する熱を電池系外に取り除くための流体流路と、を有しており、

かつ前記セパレータは、少なくとも膜-電極接合体と接する面が非金属からなり、少なくとも前記流体流路の側壁が金属からなる金属-非金属複合材料からなる

ことを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項2】

前記セパレータは、表面に前記燃料ガス流路を有する非金属からなる層と、内部に前記流体流路を有する金属からなる層と、表面に前記酸化剤流路を有する非金属からなる層とを積層して接合してなり、かつ前記燃料ガス流路及び前記酸化剤流路はセパレータの表面に配置されている請求項1に記載の固体高分子型燃料電池。

【請求項3】

前記金属は、アルミニウムを80重量%以上含む金属、チタンを80重量%以上含む金属及びステンレス鋼からなる群から選ばれる1種であり、かつ前記非金属は、炭素材料を主成分とする請求項1又は2に記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項4】

前記流体流路の側壁の表面には、セラミックスを含み抵抗率が $3 \times 10^{-4} \Omega \cdot cm$ 以下である被膜が形成されている請求項1、2又は3に記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【請求項 5】

前記金属と前記非金属との界面には、セラミックスを含み抵抗率が 3×10^{-4} $\Omega \cdot \text{cm}$ 以下である層が配置されている請求項 1、2、3 又は 4 に記載の固体高分子電解質型燃料電池。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、固体高分子電解質型燃料電池に関する。

【0002】

【従来の技術】

固体高分子電解質型の水素-酸素燃料電池は、その出力特性が優れることから、自動車等への適用が期待されている。上記燃料電池を実用化するため、燃料及び空気の利用率の高い運転条件下でも長期間安定してエネルギー効率が高く、出力密度が高い燃料電池セルの開発が要求されている。

【0003】

固体高分子電解質型燃料電池は一般に、一対の発電用電極（燃料極及び空気極）を固体高分子電解質を介して対向させ、この一対の電極と電解質とを接合して膜-電極接合体を形成し、該接合体をセパレータを介して複数積層し、全体を締めつけて一体化した構成（スタック）となっている。

【0004】

ここでセパレータは、電極に燃料ガス及び酸化剤ガス（例えば空気）を供給するための流路を有し、かつ隣接する2つの接合体間の仕切り板となる。したがってセパレータには、ガス透過性が低いこと、軽量であること、燃料電池の動作温度の150°C近傍で水蒸気雰囲気に曝された場合の耐食性、耐酸化性に優れること、長期間良好な導電性を有すること、機械加工できること等の特性が要求される。また、セパレータは電池の反応により生じた電気及び熱を効率よく電池系外に取り出すため、電気及び熱の良導体であることも必要である。

【0005】

従来のセパレータ材料として人造黒鉛、ガラス状炭素等の炭素系バルク材料が

知られているが、炭素系材料は韌性に乏しく脆いため、圧縮応力以外の応力や機械的衝撃が加わりうる条件下でセパレータとして使用する場合、以下の問題が生じる。すなわち、セパレータ自体が破壊されて形状を維持できない、亀裂が生じ気密性を維持できない、機械的な成形・加工が困難で加工コストが高い、リサイクルしにくい等の問題である。

【0006】

上記の問題を解決するための手段として、膨張黒鉛（例えば、商品名：グラフオイル、U C A R 社製）と呼ばれる扁平な黒鉛粉体粒子を、酸等により分散処理し、結合剤を加えて成形した成形体をセパレータとして使用することが提案されている。この成形体は、プレス加工等の機械加工が可能なフレキシブルな材料であり、韌性、耐機械的衝撃性に関する問題は改善されている。しかし、前記成形体は機械的強度が弱く、薄くすると形状を維持しにくかったり、小さな応力が付加されても変形しやすい問題がある。

【0007】

また、燃料電池は特に自動車用電源として使用するには小型軽量で高出力であることが必要であり、単位体積あたりの電力を大きくし、電池の反応及び通電にともなって発生する熱をコンパクトな構造で冷却することが必要である。特に電気伝導性の高い、フッ素を含む固体高分子電解質を使用する場合は、該電解質の耐熱温度が通常あまり高くないためこの冷却は必須となる。セパレータに形成された狭隘で長い流路に流体を高流速を維持して流す、具体的には高圧力で水を流すと最もコンパクトな構造で冷却できる。しかし、上記の膨張黒鉛をセパレータ材料として用いた場合、高温において水分の存在下でセパレータを保持すると、グラファイト積層粒子間に水分が侵入し、形状が維持できず、長期的信頼性に欠ける問題がある。

【0008】

上記の炭素系材料からなるセパレータの問題を解決するための手段として、セパレータ材料として表面処理したステンレス鋼、チタン、アルミニウム等の金属を使用する試みがなされている（例えば、E P 0 7 8 0 9 1 6）。金属を用いると機械加工が容易となり、薄くても強度が大きく、韌性、耐機械的衝撃性、流体

遮断性、及び熱・電気の伝導性に優れる。しかし、金属材料は比重が大きい（例えばステンレス鋼は8.0、チタンは4.5、アルミニウムは2.7である）ため、燃料電池の単位重量あたりの出力が低い問題がある。

【0009】

【発明が解決しようとする課題】

そこで本発明は、成形加工しやすい材料からなり、圧縮応力以外の応力、機械的衝撃、振動等が加わっても形状及び気密性を維持でき、燃料電池の作動温度の室温から150℃近傍までにおいて水蒸気雰囲気に曝されても長期にわたって初期の良好な導電性を維持でき、軽量かつ工業的に実用性があるセパレータを有する固体高分子電解質型燃料電池を提供することを目的とする。

【0010】

【課題を解決するための手段】

本発明は、膜状の固体高分子電解質と該電解質を介して対向する一対の燃料極及び空気極とを有する膜-電極接合体を、セパレータを介して複数積層してなる固体高分子電解質型燃料電池において、前記セパレータは、前記燃料極に燃料ガスを供給する燃料ガス流路と、前記空気極に酸化剤を供給する酸化剤流路と、反応にともなって発生する熱を電池系外に取り除くための流体流路と、を有しており、かつ前記セパレータは少なくとも膜-電極接合体と接する面が非金属からなり、少なくとも前記流体流路の側壁が金属からなる金属-非金属複合材料からなることを特徴とする固体高分子電解質型燃料電池を提供する。

【0011】

本発明において、セパレータは、燃料極及び空気極にそれぞれ燃料ガス及び酸化剤を提供する役割と、電池の反応及び通電にともなって発生する熱を電池系外に取り除くための除熱用の流体を流す役割を有している。ここで酸化剤としては主に空気が使用されるため、酸化剤が供給される電極を本明細書では空気極とよぶ。除熱用の流体としては、効率的に熱を除去できるため、水が好ましい。さらにセパレータは、隣接する2つの膜-電極接合体の間にガスや水分の透過が起こらないように遮断する役割、及び発生した電流を伝達する役割を有している。

【0012】

燃料ガス流路及び酸化剤流路は、通常セパレータの表面に形成されるリブにより形成される溝からなる。これらのガス流路は複数の直線状又は曲線状の溝からなっていてもよいが、ガスの入口と出口がそれぞれ1個ずつで蛇行した溝がセパレータ表面の全面に形成されていてもよい。

【0013】

本発明におけるセパレータは、金属-非金属複合材料からなり、少なくとも除熱用の流体流路の側壁は金属からなる。したがって、燃料電池の作動温度の150°C程度の高温において前記側壁が除熱用の流体である水に曝されても、セパレータ内部に水分が侵入することがなく、セパレータの形状は維持できる。

【0014】

また、本発明におけるセパレータは、少なくとも膜-電極接合体と接する面は非金属からなる。セパレータは電流を伝達する役割を有するので、前記非金属は導電性の炭素材料からなることが好ましい。特に、膨張黒鉛の粒子を酸等により分散処理し、結合剤を加えて成形した成形体からなることが好ましい。この成形体は、プレス加工等の機械的加工をしやすく、軽量である。

【0015】

本発明におけるセパレータを軽量化するには、金属-非金属複合材料において非金属が占める割合ができるだけ多いことが好ましい。したがって、この点では流体流路の側壁以外は全て非金属により構成されることが好ましい。しかしセパレータの製造の容易性及びセパレータの高強度化のためには、内部に流体流路を有する金属からなる層（以下、金属層という。）を、表面にガス流路を有する非金属からなる層（以下、非金属層という。）2枚の間に挟んで接合してセパレータを構成することが好ましい。このとき、2枚の非金属層は、ガス流路が表面に配置されるように金属層を挟む。

【0016】

本発明においてセパレータを構成する金属は、アルミニウムを80重量%以上含む金属、チタンを80重量%以上含む金属及びステンレス鋼からなる群から選ばれる1種であることが好ましい。ここでいう金属には合金も含まれる。これらの金属は、薄くても強度が高く、振動、機械的衝撃等の動的要因、及び引張、圧

縮等の静的機械的負荷に対する信頼性が優れている。また、水等の流体に長期的に高温で曝されても形状を維持でき、熱・電気の伝導性にも優れている。

【0017】

上記のアルミニウムを含む金属又はチタンを含む金属において、それぞれの主成分であるアルミニウム又はチタンの含有量が80重量%未満であると、セパレータを構成する金属の比重が大きくなるので好ましくない。アルミニウム又はチタンの含有量は特には90~98重量%であるのが好ましい。

【0018】

アルミニウムを主成分とする金属は、軽量でリサイクルが容易で機械加工しやすいので好ましい。アルミニウム合金としては、マグネシウム、マンガン、シリコン、銅、ニッケル、リチウム、亜鉛、鉛、ビスマス、チタン及びスズからなる群から選ばれる1種以上の金属とアルミニウムとの合金が好ましく、例えばジュラルミン、シルミン、ヒドロナリウム、アンチコローダル等が挙げられる。

【0019】

また、チタンを主成分とする金属は、単位重量あたりの機械的強度が高く、耐食性が比較的高いので好ましい。例えば、アルミニウム、鉄、バナジウム、モリブデン、マンガン、クロム、ジルコニウム、スズ、シリコン、パラジウム、タンタルからなる群から選ばれる1種以上の金属とチタンとの合金は耐食合金であり好ましい。

【0020】

また、ステンレス鋼は、単位体積あたりの機械的強度が高く、耐食性が比較的高いので好ましい。ステンレス鋼としては特に限定されず、オーステナイト系、フェライト系、マルテンサイト系のいずれも使用できる。耐食性の点から、特にオーステナイト系ステンレス鋼が好ましい。

【0021】

前記金属からなる流体流路の側壁の表面、すなわち流体と接する前記金属の表面には、セラミックスを含み抵抗率が $3 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下、特には $3 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ の被膜が形成されていることが好ましい。セラミックスを含む被膜が形成されることにより、金属の表面の酸化による劣化を防げる

。被膜の抵抗率が $3 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ を超えると、燃料電池全体の抵抗率が高くなり、エネルギーを効率良く取り出せないおそれがある。この被膜は、セラミックスのみからなる被膜であっても金属にセラミックスが分散された被膜でもよい。

【0022】

また、セパレータを構成する金属と非金属との界面には、セラミックスを含み抵抗率が $3 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下である層が配置されていることが好ましい。固体高分子電解質型燃料電池では、電池の反応にともなって空気極で水が生成される。また通常、固体高分子電解質のイオン伝導性を保つため、電解質を乾燥させないように燃料ガス及び酸化剤ガスは温潤させてそれぞれの流路に供給されている。これらの生成水及びガスに含まれる水蒸気は、除熱用流体である水のように急速かつ大量に流れることがないため、これらにセパレータの非金属部分が曝されてもセパレータの形状は崩れない。

【0023】

しかし、これらの水分はセパレータの非金属部分を浸透して金属と非金属の界面まで到達することがある。その結果、非金属と接する金属の表面が酸化され、導電性が低下するおそれがある。このとき、金属と非金属との界面に金属に比べ耐久性に優れたセラミックスからなる層が存在すると、金属の劣化を防げる。また、このセラミックスからなる層の抵抗率が $3 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ を超えると、燃料電池全体の抵抗率が高くなり、エネルギーを効率良く取り出せないおそれがある。この層の抵抗率は、特に $3 \times 10^{-6} \sim 1 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ であることが好ましい。この層は、セラミックスのみからなる層であっても金属にセラミックスが分散された層でもよい。

【0024】

【発明の実施の形態】

以下に、本発明の実施の態様を図1及び図2を用いて説明する。

図1 (a) は空気極側又は燃料極側からみたセパレータ7の平面図、図1 (b) はセパレータ7の図1 (a) のA-A' 線に沿った断面図である。セパレータ7は、非金属層1aと非金属層1bの間に金属層2が配置されてなる。

【0025】

非金属層1a及び1bの表面にはそれぞれガス流路3a及び3bが形成されており、ガス流路3a及び3bは、図1(b)に示すとおり、非金属層1a及び1bの表面に形成された溝からなる。この溝は、ガスの入口と出口となる部分が1個ずつあり、非金属層1a及び1bの表面全体に蛇行して形成されている。溝を有する面は膜-電極接合体と接し、ガス流路3a及び3bからガスが膜-電極接合体に供給される。

【0026】

非金属層1a及び1bの表面で膜-電極接合体と接する部分は、フッ素を含む撥水剤で表面処理されていることが好ましい。表面の撥水剤の存在により、膜-電極接合体で反応により生成された生成水が非金属層1a及び1bに滞留するのを防ぎ、膜-電極接合体への燃料ガス又は酸化剤ガスの供給を良好に保てる。また、非金属層内部への水分の侵入による非金属層の膨潤も防止できる。

【0027】

金属層2には除熱用の流体流路4が内部に形成されているが、この金属層2を図2(a)及び(b)により詳しく説明する。図2(a)は、セパレータの金属層2を構成する金属基体2aの平面図、図2(b)は、図2(a)のB-B'線に沿った断面図と、金属基体2aと対の金属基体2bの断面図である。金属基体2bには、除熱用の流体流路となる溝が金属基体2aとは対称的に形成されている。

【0028】

金属層2は図2(b)のように、対となる金属基体2aと金属基体2bとを、除熱用の流体流路を構成する溝4a及び4bの位置が合致するように溝が形成された面を対向させ、重ね合わせて接触する面7a及び7bを接合することにより得られる。このときの接合方法としては、溶接、ろう付け、拡散接合、接着剤による接着等が挙げられる。

【0029】

金属基体2a及び2bにそれぞれ形成された、除熱用の流体流路を構成する溝4a及び4bの表面には、それぞれセラミックスを含む被膜5a及び5bが形成されている。したがって、除熱用の流体が直接接触するのはこの被膜5a及び5b

bである。

【0030】

また、金属基体2a及び2bの除熱用の流体流路4a及び4bが形成されていない面の表面には、それぞれセラミックスを含み、金属層と非金属層の界面に配置される層6a及び6bが形成されている。

被膜5a及び5bと金属層と非金属層の界面に配置される層6a及び6bは、いずれもセラミックスを含み抵抗率が $3 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ 以下の層であり、構成材料は同じでも異なってもよいが、好ましい成分及び形成方法は共通するので以下にまとめて被膜の説明として説明する。

【0031】

被膜に含まれるセラミックスとしては、燃料電池を動作させる室温から150°C近傍までの温度範囲で水蒸気雰囲気中においても耐食性に優れ、安定した抵抗率を維持できるものが好ましく、金属の窒化物、ホウ化物、炭化物、ケイ化物、リン化物又はこれらの複合化合物が好ましい。該金属としては、イットリウム、ランタン、セリウム、サマリウム等の希土類元素、鉄、ニッケル、コバルト、クロム、ニオブ、タンタル、チタン、ジルコニウム、バナジウム、ハフニウム、パラジウム、タングステン、モリブデン等が好ましく用いられる。セラミックスとしては、具体的には、炭化チタン、ホウ化チタン、窒化チタン、ケイ化タングステン、窒化タンタル等が好ましい。これらは単独で用いても2種以上を混合して用いてもよい。

【0032】

金属にセラミックスが分散された被膜の場合、該金属としては耐食性に優れるものが好ましく、白金族元素、金、ニッケル及びタングステンからなる群から選ばれる1種以上が好ましい。この被膜中のセラミックスの含有量は、1~90重量%、特には10~60重量%が好ましい。

【0033】

金属表面に形成される被膜の厚さは、0.1 μm~0.3 mm、特には1 μm~0.1 mmであるのが好ましい。0.1 μmより薄いと充分な耐食性を有する連続した被膜又は層を形成するのが困難になる。0.3 mmより厚いと、抵抗率

の低い材料を用いても被膜又は層の抵抗が高くなり燃料電池から効率良くエネルギーを取り出しにくい。また、燃料電池の単位体積あたりの出力が小さくなる。

【0034】

金属表面に形成される被膜は、例えば帯状、線状、島状、点状等の形状で形成される。被膜又は層は規則的に形成されても不規則に形成されてもよく、被膜の厚さは均一でもよく、不均一でもよい。

【0035】

被膜の形成方法としては、スクリーン印刷法、ドクターブレード法、スプレー法、溶射法、イオンプレーティング法等の厚膜形成法、CVD法、スパッタ法等のPVD法等の薄膜形成法等いずれも使用できる。また、セラミックスを分散剤とし金属を結合剤としてめっきを行う分散めっき法によって、金属にセラミックスが分散された被膜を形成してもよい。上記分散めっき法は簡便であり、かつセパレータを構成する金属とセラミックスとの熱膨張係数が大きく異なっても被膜が剥離するおそれがなく被膜を金属基体と強固に接合できるので、工業的規模で製造する場合にも好ましい。

【0036】

また、上記被膜と金属基体の間には、密着性を向上させるための中間層が存在してもよい。中間層としては、例えばチタン、ニッケル、コバルト、金、白金等の耐食性に優れた金属の層が挙げられる。

【0037】

金属層2の厚さは、少なくとも非金属層1a及び1bを除熱用の流体と充分に遮断できる厚さが必要である。また、燃料電池の単位重量あたり及び単位体積あたりのエネルギー密度を高めるためには金属層2の厚さは薄いほど好ましい。したがって、金属層2の厚さは1μm～2mm、特には10μm～1mmが好ましい。

【0038】

非金属層1a及び1bと金属層2との接合方法としては、例えば銀ろうによつて接着し接合することが好ましい。

【0039】

本発明における膜-電極接合体は、例えば以下のようにして得られる。白金等の金属触媒を活性炭等の炭素材料に担持させた触媒と撥水剤等との混合物をカーボンペーパーに塗布又は噴霧してガス拡散電極を作製する。この電極を2枚作製し、燃料極及び空気極とする。次いで、燃料極と空気極を対向させ、間にイオン交換膜からなる固体高分子電解質を挟み、ホットプレス法により接合して空気極-固体高分子電解質-燃料極を一体化して膜-電極接合体を得る。

上記イオン交換膜としては、化学的、電気的安定性の点からスルホン酸基を有する含フッ素カーボン重合体からなることが好ましい。

【0040】

本発明の固体高分子電解質型燃料電池を例えば自動車用のエンジンの用途等のように作動中に振動したり衝撃が付与されうる環境下で使用すると、炭素材料からなるセパレータを用いた燃料電池に比べ、電池の作動の長期的信頼性が顕著に向上する。

【0041】

さらに、セパレータの除熱用の流体と接する部分や非金属層と金属部の界面にセラミックスを含む層を形成することにより、長期間にわたって初期とかわらない安定な燃料電池の性能を維持できる。

【0042】

【実施例】

以下に本発明を実施例（例1、例2、例3）及び比較例（例4、5）により説明するが、本発明はこれらに限定されない。

【0043】

【例1】

幅150mm、高さ150mm、厚さ0.3mmであり、JIS-H4000に規定される合金番号A5052のアルミニウム合金（アルミニウム含有量96重量%）からなる金属基体をプレス加工して、片面に幅1.5mm、深さ0.15mmの除熱用の流体流路となる溝を図2（a）のような形状で形成した。この溝の表面及び溝が形成されていない面の表面に、イオンプレーティング法により厚さ0.5μmのTi層を下地層として形成し、さらにその上に厚さ10μmの

窒化チタン被膜を形成した。この窒化チタン被膜の抵抗率は、 $2 \times 10^{-4} \Omega \cdot \text{cm}$ であった。

【0044】

上記金属基体と溝が対称的に形成されている以外は同じ金属基体を作製し、図2 (b) に示すように、この2枚の金属基体の溝の位置が合致するように溝が形成された面を対向させて2枚の金属基体を重ね合わせ、溶接して接合し、セパレータを構成する金属層を得た。

【0045】

次に、厚さ1.5mmの膨張黒鉛（商品名：グラフォイル、U C A R社製）を用い、プレス加工により片面に幅2mm、深さ0.35mmのガス流路となる溝を図1 (a) 及び (b) に示すような形状で形成し非金属層とした。なお、図1 (a) に示すように溝は蛇行して形成されているため、蛇行することにより平行にとなりあう溝どうしの間隔は、3mmとなるようにした。この非金属層としては、図1 (b) に示すように、溝の位置をずらして形成したものを2枚作製した。

【0046】

上記2枚の非金属層を、溝が形成されていない面を対向させ、間に上記金属層を挟んで重ねた。この状態で非金属層-金属層-非金属層の3層を加圧接合してセパレータとした。

【0047】

次に、カーボンクロスの片面に、白金を担持したカーボンブラックからなる触媒を塗布して触媒層を形成し、ガス拡散電極を得た。このガス拡散電極2枚の触媒層が形成された面を対向させ、その間にパーフルオロカーボンスルホン酸型イオン交換膜（商品名：フレミオンR、旭硝子社製）を挟み、ホットプレスして膜-電極接合体を得た。

【0048】

上記セパレータ20枚と上記膜-電極接合体19枚とを交互に積層し、全体を締め付けて固体高分子電解質型燃料電池を作製した。この燃料電池を10個作製し、それぞれにつき落下試験を10回繰り返した。落下試験は、セパレータの面

を下に向け、厚さ5cmの鋼板上に高さ50cmの位置からまっすぐに落下させた。落下試験後、5kg/cm²の圧力で空気をセパレータのガス流路に流してガスリーク試験を行ったところ、10個とも気密性に問題はなかった。

【0049】

上記燃料電池のうちの1個を取り出し、燃料ガスとして常圧の水素ガス及び酸化剤として常圧の空気を、利用率がそれぞれ70%及び40%となるようにガス流路に流した。また、水道水を水圧5kg/cm²にて除熱用の流体流路に流して冷却しながら、燃料電池を80℃にて140Aの電流を流し、初期の電圧を測定した。その後電流を流し続け、5000時間経過した後の電圧を測定し、初期の電圧値に対する割合(%)を相対出力として算出した。結果を表1に示す。

【0050】

【例2】

幅150mm、高さ150mm、厚さ0.2mmであり、純度99.4%のチタンからなる金属基体を用い、エッチング加工により片面に除熱用の流体流路となる溝を例1と同様の形状に形成した。この溝の表面及び溝が形成されていない面の表面に、窒化チタンの粒子(結晶粒子径の分布範囲0.1~3μm、抵抗率 $4.0 \times 10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}$)を分散させたニッケルワット浴を用いてメッキし、厚さ10μmの被膜を形成した。この窒化チタン/ニッケル被膜の抵抗率は、 $2.0 \times 10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}$ であった。

【0051】

上記のチタンからなる金属基体とは対称的に溝が形成されている以外は同じ対となる金属基体を作製し、例1と同様にして一対の金属基体2枚を接合し、セパレータを構成する金属層を得た。

【0052】

上記金属層を用いた以外は例1と同様にして固体高分子型燃料電池を作製し、例1と同様の落下試験を行い、さらにガスリーク試験を行ったところ、気密性に問題はなかった。次いで例1と同様にして耐久性試験を行い、5000時間後の相対出力を算出した。結果を表1に示す。

【0053】

【例3】

幅150mm、高さ150mm、厚さ0.15mmのSUS316からなる金属基体を用い、例1と同様にして片面に除熱用の流体流路となる溝を形成した。この溝の表面及び溝が形成されていない面の表面に、スパッタ法によりケイ化モリブデンからなる厚さ0.3μmの被膜を形成した。このケイ化モリブデン被膜の抵抗率は、 $2.2 \times 10^{-5} \Omega \cdot \text{cm}$ であった。

上記のSUS316からなる金属基体と対称的に溝が形成されている以外は同じ対となる金属基体を作製し、例1と同様にして一対の金属基体2枚を接合し、セパレータを構成する金属層を得た。

【0054】

上記金属層を用いた以外は例1と同様にして固体高分子型燃料電池を作製し、例1と同様の落下試験を行い、さらにガスリーク試験を行ったところ、気密性に問題はなかった。次いで例1と同様にして耐久性試験を行い、5000時間後の相対出力を算出した。結果を表1に示す。

【0055】

【例4】

例1におけるアルミニウム合金からなる基体のかわりに該基体と同じ大きさの膨張黒鉛からなる基体を用い、片面に除熱用の流体流路となる溝を例1と同様の形状に形成した。

【0056】

上記の膨張黒鉛からなる基体とは溝が対称的に形成されている以外は同じ対となる基体を作製し、溝の位置が合致するように一対の基体2枚の溝が形成された面を対向させて一対の基体を重ね合わせ、これを金属層のかわりに用いた以外は例1と同様にして固体高分子型燃料電池を作製した。例1と同様の落下試験を行い、さらにガスリーク試験を行ったところ、気密性に問題はなかった。次いで例1と同様にして耐久性試験を行い、5000時間後の相対出力を算出した。結果を表1に示す。

【0057】

【例5】

例1における非金属層と同じ大きさで同じ形状の層を例1で使用したアルミニウム合金を用いて作製した。この層を非金属層のかわりに用い、金属層との接合を機械加工により行った以外は例1と同様にしてセパレータを作製した。

このセパレータを用いた以外は例1と同様にして固体高分子型燃料電池を作製した。例1と同様の落下試験を行い、さらにガスリーク試験を行ったところ、気密性に問題はなかった。次いで例1と同様にして耐久性試験を行い、5000時間後の相対出力を算出した。結果を表1に示す。

【0058】

【表1】

| | 相対出力 (%) |
|----|----------|
| 例1 | 98 |
| 例2 | 96 |
| 例3 | 97 |
| 例4 | 60 |
| 例5 | 85 |

【0059】

【発明の効果】

本発明によれば、圧縮応力以外の応力や機械的衝撃が付与されうる環境条件下で固体高分子電解質型燃料電池を使用した場合でも、セパレータは破壊されたり亀裂を生じることなく、初期の形状を維持して燃料電池の気密性を維持できる。また、本発明におけるセパレータは、機械的な成形、加工が容易でありリサイクルもしやすい。さらに、本発明におけるセパレータは従来の金属製セパレータに比べ軽量である。したがって、本発明の固体高分子電解質型燃料電池は、軽量で高出力であり、長期的に耐久性に優れている。

【0060】

【図面の簡単な説明】

【図1】 (a) 本発明の実施態様のセパレータの平面図。 (b) 図1 (a) のA-A' 線に沿った断面図。

【図2】 (a) 本発明の実施態様のセパレータの金属層を形成する金属基体の平

面図。 (b) 図2 (a) のB-B' 線に沿った金属基体の断面図と該金属基体と
対の金属基体の断面図。

【符号の説明】

1 a、1 b : 非金属層

2 : 金属層

2 a、2 b : 金属基体

3 a、3 b : ガス流路

4 : 除熱用の流体流路

4 a、4 b : 除熱用の流体流路を構成する溝

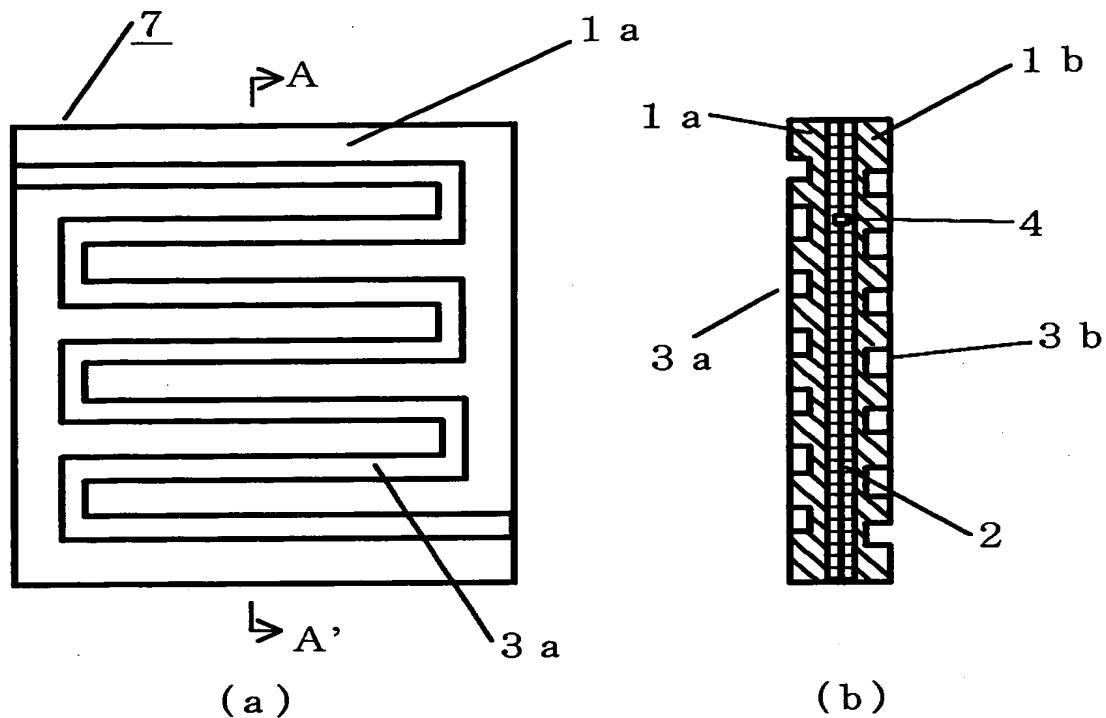
5 a、5 b : 被膜

6 a、6 b : 金属層と非金属層の界面に配置される層

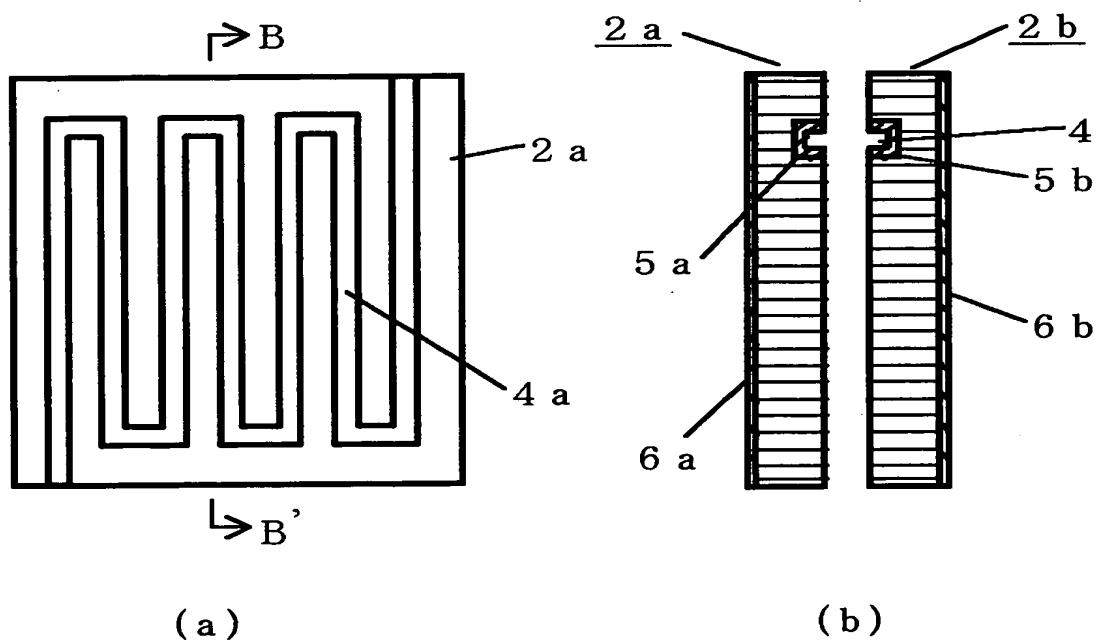
7 : セパレータ

【書類名】図面

【図1】



【図2】



【書類名】要約書

【要約】

【課題】形状安定性及び気密性に優れ軽量なセパレータを有し、長期間安定して高性能な固体高分子電解質型燃料電池の提供。

【解決手段】少なくとも除熱用の流体流路の側壁は金属で構成され、少なくとも膜-電極接合体と接する面は非金属で構成される、金属-非金属複合材質からなるセパレータを使用する固体高分子電解質型燃料電池。

【選択図】図1

出願人履歴情報

識別番号 [000000044]

1. 変更年月日 1990年 9月 6日

[変更理由] 新規登録

住 所 東京都千代田区丸の内2丁目1番2号
氏 名 旭硝子株式会社

2. 変更年月日 1999年 12月 14日

[変更理由] 住所変更

住 所 東京都千代田区有楽町一丁目12番1号
氏 名 旭硝子株式会社